

10/521769

BT15 Rec'd PCT/PTO 19 JAN 2005

DOCKET NO.: 264451US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Hans LICHTENSTEIN, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/EP03/08213

INTERNATIONAL FILING DATE: July 25, 2003

FOR: MOULDING COMPOSED OF PLASTIC, COMPRISING A FLUORESCENT DYE

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Germany	102 44 706.3	24 September 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/EP03/08213. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

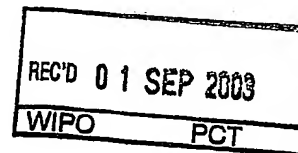
(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

10 / 521769

19 JAN 2005

PCT/EP 03 / 08213

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 102 44 706.3

Anmeldetag: 24. September 2002

Anmelder/Inhaber: Röhm GmbH & Co KG, Darmstadt/DE

Bezeichnung: Formkörper aus Kunststoff, enthaltend
einen Fluoreszenzfarbstoff

IPC: C 08 J, C 09 K, C 09 D

BEST AVAILABLE COPY

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der
ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 24. März 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Hiebinger

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

Formkörper aus Kunststoff, enthaltend einen Fluoreszenzfarbstoff

Die Erfindung betrifft einen Formkörper aus Kunststoff, enthaltend einen Fluoreszenzfarbstoff.

Stand der Technik

EP-A 0 553 083 beschreibt Leuchtkörper aus Kunststoff, die einen Fluoreszenzfarbstoff und ein Weißpigment, z. B. TiO_2 oder BaSO_4 , in Konzentrationen von 0,1 bis 5 Gew.-% enthalten. Zusätzlich können weitere Pigmente enthalten sein.

Aufgabe und Lösung

Formkörper, insbesondere Kunststoffplatten aus gegossenem Polymethylmethacrylat, die gemäß der EP-A 0 553 083 einen Fluoreszenzfarbstoff und BaSO_4 als Streumittel enthalten sind bekannt. Ausgehend von diesem Stand der Technik sollte insbesondere die Farbbrillanz der Formkörper verbessert werden.

Die Aufgabe wird gelöst durch einen

Formkörper aus einer Kunststoff-Matrix aus einem transparenten Kunststoff, enthaltend einen löslichen Fluoreszenzfarbstoff und ein Streumittel mit einem Brechungsindexunterschied von $\pm 0,003$ bis 0,2 zur Kunststoff-Matrix,

dadurch gekennzeichnet, daß

das zusätzlich ein Weißpigment, das einen Brechungsindexunterschied von + 0,4 bis 1,5 zur Kunststoff-Matrix aufweist, in einer Konzentration von 0,001 bis 0,1 Gew.-% enthalten ist.

Überraschenderweise bewirkt der Zusatz des Weißpigments in einer unüblich geringen Konzentration eine deutliche Steigerung der Farbbrillanz. Die erfindungsgemäßen Formkörper weisen insbesondere einen Remissionsgrad gemessen in % mit einem Spektralphotometer nach DIN 5036 auf, der um mindestens 10 % höher liegt als bei einem entsprechenden Formkörper ohne Weißpigment. Dabei ist die Steigerung der Farbbrillanz bereits mit bloßem Auge deutlich wahrnehmbar.

Ausführung der Erfindung

Die Erfindung betrifft Formkörper aus einer Kunststoff-Matrix aus einem transparenten Kunststoff, enthaltend einen löslichen Fluoreszenzfarbstoff, ggf. in Kombination mit weiteren Farbmitteln (Pigmente, Farbstoffe), und ein Streumittel mit einem Brechungsindexunterschied von +/- 0,003 bis 0,2 zur Kunststoff-Matrix,

dadurch gekennzeichnet, daß

das zusätzlich ein Weißpigment, das einen Brechungsindexunterschied von + 0,4 bis 1,5 zur Kunststoff-Matrix aufweist, in einer Konzentration von 0,001 bis 0,1 Gew.-% enthalten ist.

Fluoreszenzfarbstoffe

Der Formkörper enthält an sich bekannte lösliche Fluoreszenzfarbstoffe, z. B. solche basierend auf der chemischen Klasse der Perylene.

WO 99/16847 beschreibt Fluoreszenzfarbstoffe, die in Kunststoffen wie z. B. Polycarbonat, Polymethylmethacrylat, Polyvinylidenfluorid oder Mischungen aus Polymethylmethacrylat und Polyvinylidenfluorid löslich sind und für gelb fluoreszierende Artikel bzw. Formkörper eignen. Bei den Fluoreszenzfarbstoffen handelt es sich um Mischungen aus N,N'-disubstituiertem 3,4:9,10-Perylenbis(dicarboximid) und gelb fluoreszierenden Farbstoffen mit definierten Farbkoordinaten-Bereichen gemäß dem CIE 1931 Standard colorimetrischen System und Fluoreszenz/Lumineszenz-Faktoren größer 5.

Geeignet für die Zwecke der Erfindung sind insbesondere die handelsüblichen Fluoreszenzfarbstoffe Lumogen® F Orange 240, Lumogen® F Gelb 083, Lumogen® F Rot 240 (Lumogen®: Marke der BASF AG, Ludwigshafen, Deutschland) sowie Hostasol® Gelb 3G.

Weitere Farbmittel

Die Fluoreszenzfarbstoffe können in Kombination mit weiteren Farbmitteln vorliegen. Weitere Farbmittel sind z. B. Pigmente und Farbstoffe, insbesondere nicht fluoreszierende Farbstoffe. Weitere Farbmittel sind z. B. Kupfer-Phthalocyaningrün, Kupfer-Phthalocyaninblau, Eisenoxid-Rot, Ultramarinblau, Chromtitangelb, Farbstoffe der Anthrachinonreihe. Die Kombination von Fluoreszenzfarbstoffen mit weiteren Farbmitteln ermöglicht die Abdeckung eines größeren Farbspektrums. Beispielsweise kann die Kombination eines gelb fluoreszierenden Fluoreszenzfarbstoffs mit einem Grünpigment, z. B.,

Kupfer-Phthalocyaningrün, sinnvoll eingesetzt werden, um ein brilliant fluoreszierendes Grün zu erzeugen. Weitere Farbmittel können z. B. in Mengen von 0,001 bis 1, bevorzugt von 0,01 bis 0,5 Gew.-% enthalten sein.

Streumittel

Unter Streumitteln sind nicht lösliche Zusätze von geringer Größe, z. B. im Bereich von 1 μm bis 1 mm, zu verstehen, die sich in die Matrix-Kunststoff einarbeiten lassen. Die Streumittel weisen einen Brechungsindexunterschied im Bereich von $\pm 0,003$ bis 0,2 auf.

Geeignete Streumittel sind z. B. Aluminiumhydroxid, Aluminium-Kalium-Silikat (Glimmer), Aluminiumsilikat (Kaolin), Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Magnesiumsilikat (Talkum), Polystyrol und/oder Lichtstreuperlen aus vernetztem Kunststoff. Lichtstreuperlen aus Copolymeren aus Methymethacrylat und Styrol oder Benzylmethacrylat, die zusätzlich vernetzt sein können, sind bekannt z. B. aus DE 35 28 165 C2, EP 570 782 B1 oder EP 656 548 A2.

Weißpigment

Das Weißpigment weist einen Brechungsindexunterschied von + 0,4 bis 1,5, bevorzugt von + 0,5 bis 1,4, besonders bevorzugt von 1,0 bis 1,3 zur Kunststoff-Matrix auf und ist in der Kunststoff-Matrix in einer Konzentration von 0,001 bis 0,1, bevorzugt 0,005 bis 0,01 Gew.-% enthalten.

Bevorzugte Weißpigmente sind z. B. Titandioxid (TiO_2), Zinkoxid (ZnO) oder Zinksulfid (ZnS).

Formkörper

Der erfindungsgemäße Formkörper weist einen Remissionsgrad gemessen in % mit einem Spektralphotometer nach DIN 5036 auf, der um mindestens 10 %, bevorzugt mindestens 15, insbesondere mindestens 20 % höher liegt als bei einem entsprechenden Formkörper ohne Weißpigment.

Die erfindungsgemäßen Formkörper können nach Einarbeitung des Fluoreszenzfarbstoffs und gegebenenfalls weiterer Farbmittel in die entsprechenden Kunststoffe bzw. in die Kunststoff-Matrix vor oder nach deren Polymerisation erhalten werden. Die Einarbeitung kann verfahrensmäßig z. B. durch Einrühren, mittels Knetern, Auftrommeln, Direktzudosieren oder die Zugabe hochkonzentrierter Masterbatches in einen polymerisierbaren Kunststoffsirup oder in die Kunststoffschmelze eines thermoplastischen Polymers erfolgen. Das so eingefärbte Kunststoffmaterial kann in an sich bekannter Weise z. B. durch Extrusion, Spritzguß, Warmformen, spanende Verarbeitung etc. weiterverarbeitet werden.

Es kann sich um einen praktisch beliebigen Formkörper handeln. Bevorzugt ist die Form von Platten, Rohren oder Stäben.

Kunststoffe

Der transparente Kunststoff der Kunststoff-Matrix weist eine Transmission im sichtbaren Bereich von mindestens 40 %, bevorzugt mindestens 50, besonders bevorzugt mindestens 70 %, insbesondere mindestens 80 % auf (Lichttransmissionsgrad für Tageslicht (Normlichtart D65) τ_{D65} s. z. B. DIN 67 507). Bevorzugt sind thermoelastische oder thermoplastische Kunststoffe.

Der transparente Kunststoff der Kunststoff-Matrix kann extrudierter Polymethylmethacrylat-Kunststoff, gegossener Polymethylmethacrylat-Kunststoff, schlagzäh modifizierter Polymethylmethacrylat-Kunststoff, Polycarbonat-Kunststoff, Polystyrol-Kunststoff, Styrol-Acryl-Nitril-Kunststoff, Polyethylenterephthalat-Kunststoff, glykolmodifizierter Polyethylenterephthalat-Kunststoff, Polyvinylchlorid-Kunststoff, transparenter Polyolefin-Kunststoff, Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS)-Kunststoff und/oder eine Mischung (Blend) der genannten Kunststoffe sein.

Verwendungen

Die erfindungsgemäßen Formkörper können z. B. für Fahrzeugkarosserien, Designermöbel, Hinweisschilder oder Teilen davon oder für die Beleuchtungstechnik, z. B. für Lichtwerbeanlagen verwendet werden. Zur Anregung der Fluoreszenz reicht in der Regel bereits das normale Tageslicht aus. Ebenso kann eine aktive Beleuchtung z. B. mittels Leuchtstoffröhren oder gegebenenfalls mit LEDs erfolgen.

BEISPIELE

Lösung:

In 1000 Teilen präpolymeres Methylmethacrylat (Viskosität ca. 1000 cP) werden

1 Teil 2,2'-Azobis-(2,4-dimethylvaleronitril) und die Farbmittel nach Tab. 1 gelöst.

In diesen Ansatz gibt man eine Farbpaste bestehend aus

- 3 Gew.-Teilen eines löslichen Polymethylmethacrylatharzes,
- 10 Gew.-Teilen Bariumsulfat und je nach Versuch die in Tabelle 1 angegebenen Mengen (Gew.-%) Titandioxid bzw. Zinksulfid, die in
- 30 Gew.-Teilen Methylmethacrylat mit einem schnelllaufenden Dispergator (Rotor/Stator-Prinzip) dispergiert wird, hinzu

Der Ansatz wird intensiv gerührt, in eine mit 3mm dicken Schnur distanzierten Silikatglaskammer gefüllt und im Wasserbad bei 45°C polymerisiert. Die Endpolymerisation erfolgt im Temperschrank bei 115°C.

Die Messung des Farborts (L^* , a^* , B^*) erfolgt mit einem Spektralphotometer nach DIN 5033.

Tab. 1

Vers.- Nr.	Titandioxid	Zinksulfid	Lumogen F Orange 240	Lumogen F Gelb 083	Lumogen F Rot 305	Hostasol Gelb 3G
113T	-----	-----	0,05	-----	-----	-----
144M	0,0075	-----	0,05	-----	-----	-----
113Q	-----	-----	-----	0,05	-----	-----
144K	0,0075	-----	-----	0,05	-----	-----
113S	-----	-----	-----	-----	0,05	-----
144E	-----	0,0125	-----	-----	0,05	-----
144G	0,0075	-----	-----	-----	0,05	-----
148A	-----	-----	-----	-----	-----	0,05
148F	0,0075	-----	-----	-----	-----	0,05

Angaben: in Gew. %

Ergebnisse:

Tab. 2 Farbwerte L, a, b nach CIELAB bei Lichtart D65/10° in Remission

Vers.- Nr.	Farbton	L*	a*	b*	Remissions- grad In %	visuelle Beurteilung bei Tageslicht D65
113T	Orange	56,29	23,66	94,86	24,2	orange-gelb fluoreszierend, etwas trübe
144M	Orange	66,10	29,80	105,55	35,5	orange-gelb fluoreszierend, sehr brillant
113Q	Gelbgrün	62,34	-31,70	80,00	30,8	gelb fluoreszierend, etwas trübe
144K	Gelbgrün	70,53	-31,21	90,56	41,5	gelb fluoreszierend, sehr brillant
113S	Rot	34,77	60,93	59,94	8,4	rot fluoreszierend, etwas trübe
144E	Rot	37,81	65,73	59,53	10,0	rot fluoreszierend, sehr brillant
144G	Rot	37,40	64,83	58,77	9,8	rot fluoreszierend, sehr brillant
148A	Gelb	64,40	-30,14	90,36	33,3	gelb fluoreszierend, etwas trübe
148F	Gelb	72,31	-28,77	99,64	44,1	gelb fluoreszierend, sehr brillant

Wie aus den Farbwerten und auch bei visueller Beurteilung ersichtlich, sind die mit der Kombination Bariumsulfat/Titandioxid (Zinksulfid) hergestellten Produkte deutlich brillanter im Farbton. Rot hat einen höheren Rotwert, Gelb hat einen höheren Gelbwert usw. Auch visuell ist die Verbesserung deutlich zu erkennen.

PATENTANSPRÜCHE

1. Formkörper aus einer Kunststoff-Matrix aus einem transparenten Kunststoff, enthaltend einen löslichen Fluoreszenzfarbstoff und ein Streumittel mit einem Brechungsindexunterschied von $\pm 0,003$ bis $0,2$ zur Kunststoff-Matrix,

dadurch gekennzeichnet, daß

zusätzlich ein Weißpigment, das einen Brechungsindexunterschied von $+ 0,4$ bis $1,5$ zur Kunststoff-Matrix aufweist, in einer Konzentration von $0,001$ bis $0,1$ Gew.-% enthalten ist.

2. Formkörper nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Weißpigment Titandioxid, Zinkoxid oder Zinksulfid eingesetzt wird.
3. Formkörper nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Streumittel Aluminiumhydroxid, Aluminium-Kalium-Silikat (Glimmer), Aluminiumsilikat (Kaolin), Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Magnesiumsilikat (Talkum), Polystyrol und/oder Lichtstreuperlen aus vernetztem Kunststoff enthalten sind.
4. Formkörper nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß sein Remissionsgrad um mindestens 10% höher liegt als bei einem entsprechenden Formkörper ohne Weißpigment.

5. Formkörper nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der transparente Kunststoff der Kunststoff-Matrix eine Transmission im sichtbaren Bereich von mindestens 40 % aufweist (Lichttransmissionsgrad für Tageslicht (Normlichtart D65) τ_{D65} s. z. B. DIN 67 507).
6. Formkörper nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der transparente Kunststoff der Kunststoff-Matrix extrudierter Polymethylmethacrylat-Kunststoff, gegossener Polymethylmethacrylat-Kunststoff, schlagzäh modifizierter Polymethylmethacrylat-Kunststoff, Polycarbonat-Kunststoff, Polystyrol-Kunststoff, Styrol-Acryl-Nitril-Kunststoff, Polyethylenterephthalat-Kunststoff, glykolmodifizierter Polyethylenterephthalat-Kunststoff, Polyvinylchlorid-Kunststoff, transparenter Polyolefin-Kunststoff, Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS)-Kunststoff und/oder eine Mischung (Blend) der genannten Kunststoffe ist.
7. Formkörper nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß der Fluoreszenzfarbstoff in Kombination mit weiteren Farbmitteln vorliegt.
8. Verwendung von Formkörpern nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7 für Fahrzeugkarosserien, Designermöbel, Hinweisschilder oder Teilen davon oder für die Beleuchtungstechnik, z. B. für Lichtwerbeanlagen.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Erfindung betrifft einen Formkörper aus einer Kunststoff-Matrix aus einem transparenten Kunststoff, enthaltend einen löslichen Fluoreszenzfarbstoff und ein Streumittel mit einem Brechungsindexunterschied von $\pm 0,003$ bis $0,2$ zur Kunststoff-Matrix, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich ein Weißpigment, das einen Brechungsindexunterschied von $+ 0,4$ bis $1,5$ zur Kunststoff-Matrix aufweist, in einer Konzentration von $0,001$ bis $0,1$ Gew.-% enthalten ist.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.